



# 高強度・高導電性亜共晶Cu-Zr合金の開発とその性質

|        |   |
|--------|---|
| 著者     | 村松 尚国   |
| 号      | 58  |
| 学位授与機関 | Tohoku University   |
| 学位授与番号 | 工博第004881号  |
| URL    | <a href="http://hdl.handle.net/10097/58947">http://hdl.handle.net/10097/58947</a> |

|               |   |
|---------------|---|
| 氏 名           | むら まつ なお くに<br>村 松 尚 国                          |
| 授 与 学 位       | 博士（工学）  |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成 2 5 年 9 月 2 5 日                              |
| 学位授与の根拠法規     | 学位規則第 4 条第 1 項                                  |
| 研究科，専攻の名称     | 東北大学大学院工学研究科（博士課程）材料システム工学専攻                    |
| 学 位 論 文 題 目   | 高強度・高導電性亜共晶 Cu-Zr 合金の開発とその性質                    |
| 指 導 教 員       | 東北大学教授 後藤 孝                                     |
| 論 文 審 査 委 員   | 主査 東北大学教授 後藤 孝      東北大学教授 川崎 亮<br>東北大学教授 千葉 晶彦 |

## 論 文 内 容 要 旨

電子機器の小型化や高機能化が進み、導電部品に使用される銅合金にはますます高強度かつ高導電性が求められている。しかし実用銅合金の引張強度と導電率との間には、顕著なトレードオフの関係が存在する。このため、電子機器の小型化、省資源・省エネ化、および低環境負荷に資する高強度・高導電性銅合金の開発が待望されている。

本論文では、亜共晶 Cu-Zr 合金の「高導電性化」、「高強度・高導電性化」に関する研究開発結果を示す。各章の要旨を以下に示す。

### 第 1 章 序論

従来から銅合金の強化方法としては、加工硬化、結晶微細化、固溶強化および析出硬化などの手法が用いられてきた。これらのいずれか、または複数の方法を組み合わせた特性改善の試みが数多く行われてきたが、いずれも前述したように引張強度と導電率との間にはトレードオフの関係が存在するため、もはや実用銅合金の特性改善には限界が生じていた。そこで、これらの手法とは異なる繊維強化法に着目して研究を行った。つまり、溶解鑄造時に $\alpha$ -Cu 母相中に樹枝状組織を持つ $\alpha$ -Cu 相と化合物相からなる共晶相が生成している亜共晶 Cu-Zr 合金を伸線加工することによって、繊維状組織を生成させて強化することを考えた。この際に、Cu に対して固溶度の小さい Zr を選択したのは、伸線加工後も高い導電性が維持できることを期待したためである。

本研究の目的は、このような繊維強化法を利用した高強度・高導電性二元系 Cu-Zr 合金の開発であり、その開発目標値を、

第 1 目標（高導電性化）                      :    導電率 70%IACS 以上，引張強度 900MPa 以上

第 2 目標（高強度・高導電性化）:    導電率 40%IACS 以上，引張強度 1200MPa 以上

とした。

## 第2章 実験方法

溶解鑄造法では、目標組成に調製した母合金を Ar ガス雰囲気中で高周波溶解後、丸棒形状のキャビティを持つ銅鑄型へ鑄込み鑄造材 (IM 材) を作製した。この IM 材の寸法は、Cu-0.5, Cu-1, Cu-2at%Zr 合金では直径 12mm、長さ約 180mm、Cu-3, Cu-4, Cu-5at%Zr 合金では直径 3mm、長さ約 70mm であった。

粉末冶金法では、Cu-1, Cu-3, Cu-5at%Zr 合金組成に調製した母合金を高圧ガスアトマイズ装置で粉末を作製した。これを 106 $\mu$ m 以下に篩い分けしてから、放電プラズマ焼結装置で 1173K に 15min 間保持して、50 $\times$ 50 $\times$ 10mm<sup>3</sup> の焼結材 (SPS 材) を作製した。これを切削加工して、直径 10mm、長さ 50mm の伸線加工用丸棒材を作製した。これを、適宜 923K での焼鈍を行いながらスウェーjing、溝ロール、コンバインド・ロール、カセットローラー・ダイスで直径 1mm、超硬ダイスで直径 0.5 mm、およびダイヤモンド・ダイスで直径 0.5 mm 以下の線材を作製した。

電気抵抗は四端子法電気抵抗測定装置を用いて常温で測定した。導電率 (EC(%IACS)) は、測定した電気抵抗率 ( $\rho$ ) を 20 $^{\circ}$ C で 0.017241 $\mu\Omega$ m の電気抵抗を持つ万国標準軟銅の導電性を 100% とした時の比率として、 $EC(\%IACS)=0.017241/\rho\times 100(\%)$  の式から求めた。引張強度は精密万能試験機、硬さはビッカース硬度計、およびヤング率は日本テクノプラス製 TE-RT 片持共振式弾性率測定装置を用いて測定した。ミクロ組織は、走査型電子顕微鏡 (SEM) 像、走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 明視野 (BF) 像および高角度環状暗視野 (HAADF) 像、組成はエネルギー分散型 X 線分光 (EDX) 分析、構造は電子後方散乱回折 (EBSD)、制限視野電子線回折 (SAED)、およびナノビーム電子線回折 (NBD) により調べた。

## 第3章 溶解鑄造法による Cu-xat%Zr (x=0.5~5) 合金の作製とその性質

第1目標 (高導電性化) である導電率 70%IACS 以上、引張強度 900MPa 以上を目指した研究で使用した Cu-0.5, Cu-1, Cu-2at%Zr 合金 IM 材の構造は、 $\alpha$ -Cu 相と共晶相 ( $\alpha$ -Cu 相と Cu<sub>5</sub>Zr 化合物相) からなる亜共晶組織であり、 $\alpha$ -Cu 相と共晶相との界面付近の結晶方位は一致していた。Zr 量が増加すると、共晶相の量は増加すると共に、組織は分散状からデンドライト状へと変化した。

Cu-0.5, Cu-1, Cu-2at%Zr 合金 IM 材を伸線加工すると、Cu-0.5at%Zr 合金線材では Cu<sub>5</sub>Zr 化合物相が Cu<sub>9</sub>Zr<sub>2</sub> 化合物相へ、Cu-1at%Zr 合金線材では Cu<sub>5</sub>Zr 化合物相が Cu<sub>8</sub>Zr<sub>3</sub> 化合物相へと変態した。これら線材の導電率や引張強度は、共晶相の量および加工度 ( $\eta$ ) に依存して変化した、その変化率は小さかった。 $\eta$  が 8.0 以上で伸線加工して作製した線材の導電率および引張強度は、それぞれ 61~83%IACS、690~1010MPa であった。

第2目標（高強度・高導電性化）である導電率 40%IACS 以上、引張強度 1200MPa 以上を目指した研究で使用した Cu-3, Cu-4, Cu-5at%Zr 合金 IM 材の構造は、 $\alpha$ -Cu 母相中に $\alpha$ -Cu 相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相の共晶相で構成された亜共晶組織であった。Zr 量が増加すると、典型的なデンドライト組織を持つ共晶相の量は増加した。

Cu-3, Cu-4, Cu-5at%Zr 合金 IM 材を伸線加工すると、 $\alpha$ -Cu 相と共晶相（ $\alpha$ -Cu 相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相）からなる亜共晶組織は繊維状になった。そして、加工度（ $\eta$ ）が大きくなるに従って、 $\alpha$ -Cu 相と共晶相内の  $\alpha$ -Cu 相は一体化し、 $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相と共にナノ繊維状組織になった。このナノ繊維状組織を持つ $\alpha$ -Cu 相は導電率に寄与し、 $\alpha$ -Cu 相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相からなるナノ繊維状組織は引張強度に寄与していた。Cu-3, Cu-4, Cu-5at%Zr 合金線材の導電率および引張強度と加工度（ $\eta$ ）との間には、前者は負、後者は正の相関があった。Cu-5at%Zr 合金線材の導電率および引張強度は、それぞれ 16%IACS、2234MPa であった。

#### 第4章 粉末冶金法による Cu-xat%Zr（x=1～5）合金の作製とその性質

50×50×10mm<sup>3</sup>の焼結材（SPS 材）は、高圧ガスアトマイズ法で作製した Cu-1, Cu-3, Cu-5at%Zr 合金粉末を 106 $\mu\text{m}$  以下に篩い分けした粉末を放電プラズマ焼結法で作製した。

Cu-5at%Zr 合金粉末は、同組成の IM 材よりも微細な $\alpha$ -Cu 相と共晶相とのデンドライト組織であった。Cu-1, Cu-3, Cu-5at%Zr 合金 SPS 材は、粗大なネットワーク状の Cu 相とモザイク状に分散した  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物との二相組織へと変化した。この  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物相の量は、Zr 添加量とともに増加した。

Cu-1, Cu-3, Cu-5at%Zr 合金 SPS 材から伸線加工して作製した線材の組織は、Cu 相中に  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物相が伸線方向に均一に分散していた。これら SPS 線材の導電率はおよび引張強度は、同組成の IM 線材に比べ、前者は 28～60%高く、後者は 40～56%低くなった。

#### 第5章 亜共晶 Cu-Zr 合金の線材化と機械的・電氣的性質

亜共晶 Cu-Zr 合金 IM 材から伸線加工して作製した線材の強化機構は、ナノ繊維化した組織を持つ $\alpha$ -Cu 相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相の複合則、変形双晶による強化、 $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相内の一部のナノアモルファス化、および $\alpha$ -Cu 相の加工硬化との相乗効果であることを示した。一方、亜共晶 Cu-Zr 合金 SPS 材から伸線加工して作製した線材の強化機構は、 $\alpha$ -Cu 相内に生成した微細な  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物相の分散強化であることを示した。

亜共晶 Cu-Zr 合金 IM 材から伸線加工して作製した線材が良好な導電率を示したのは、強加工によっても  $\alpha$ -Cu 相内に転位の堆積が少なく、単相組織を維持していたためと考えた。亜共晶 Cu-Zr 合金 SPS 材から伸線加工して作製した線材の導電率が同組成のそれよりも大きかったのは、SPS で形成されたネットワークした組織を持つ Cu 相に基づくことを示した。また、 $\alpha$ -Cu 相の加工硬化が電氣的性質に与える影響は小さい

めであると考えられた。

## 第6章 実用部品への応用

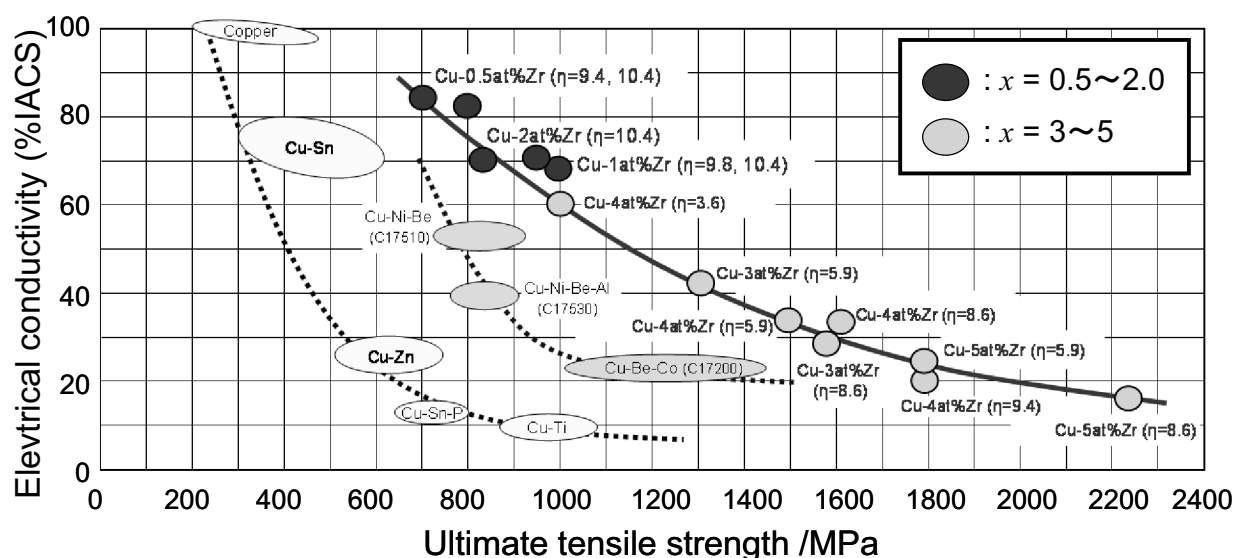
本研究で開発した亜共晶 Cu-Zr 合金線材の実用化の可能性を見極めるため、実用部品を模擬したモーターのステーターコイル特性や高周波損失および発熱量について調べ、軟銅線のそれらと比較検討した。そして、大電流および小電流への用途として、前者では SR モーター用巻き線、後者では高周波コイルへの実用化の可能性を示した。また、本開発した Cu-Zr 合金線材の高強度・高導電性によって、高周波コイルの巻き数向上や部品小型化による省エネルギー化を図れることを示した。

高強度・高導電性を持つ亜共晶 Cu-Zr 合金線材を圧延して作製した平線圧延材が、小型・高占積率モーターの巻き線などへ実用化できる可能性を示した。

亜共晶 Cu-Zr 合金 SPS 材の研究で得られた知見に基づいて、高硬度・高導電性を持つ過共晶 Cu-Zr 合金 SPS 材を検討し、高圧ガスアトマイズ法で作製した粉末からニアネットシェイプ成形材が作製できれば、抵抗溶接電極、軸受け、耐摩耗部品などへ実用化できる可能性を示した。

## 第7章 総括

Cu-xat%Zr ( $x=0.5\sim5$ ) 合金 IM 材を伸線加工して作製した線材の引張強度と導電率との関係を下図にまとめた。図は、商用の中で最も優れた引張強度と導電率を持つ Cu-Be 系合金を凌駕し、しかも第1目標（高導電性化）である導電率 70%IACS 以上、引張強度 900MPa 以上、第2目標（高強度・高導電性化）である導電率 40%IACS 以上、引張強度 1200MPa 以上を超えており、本研究の目標が達成できたことを示した。



# 論文審査結果の要旨

本論文は、電子機器の小型化、省資源・省エネ化、および低環境負荷に資する高強度・高導電性銅合金の開発を目的とし、亜共晶 Cu-Zr 合金の微細組織と導電性および機械的強度の関係を調べたもので、全7章からなる。

第1章は、序論であり研究の背景を述べ、本論文の目的と構成を記した。

第2章では実験方法を記した。

第3章では、溶解鋳造法による  $\text{Cu-}x\text{at}\%\text{Zr}$  ( $x=0.5\sim5$ ) 合金の作製とその性質を調べた。 $\text{Cu-}0.5$ ,  $\text{Cu-}1$ ,  $\text{Cu-}2\text{at}\%\text{Zr}$  合金の構造は、 $\alpha\text{-Cu}$  相と共晶相 ( $\alpha\text{-Cu}$  相と  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物相) からなる亜共晶組織であった。これら線材では、加工度 ( $\eta$ ) が 8.0 以上での導電率および引張強度は、それぞれ 61~83% IACS、690~1010 MPa であった。 $\text{Cu-}3$ ,  $\text{Cu-}4$ ,  $\text{Cu-}5\text{at}\%\text{Zr}$  合金を伸線加工すると、 $\alpha\text{-Cu}$  相と共晶相 ( $\alpha\text{-Cu}$  相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相) からなる亜共晶組織は繊維状になった。 $\text{Cu-}5\text{at}\%\text{Zr}$  合金線材の導電率および引張強度は、それぞれ 16% IACS、2234 MPa であった。

第4章では、粉末冶金法による  $\text{Cu-}x\text{at}\%\text{Zr}$  ( $x=1\sim5$ ) 合金の作製とその性質を調べた。高圧ガスアトマイズ法で作製した  $\text{Cu-}1$ ,  $\text{Cu-}3$ ,  $\text{Cu-}5\text{at}\%\text{Zr}$  合金粉末を放電プラズマ焼結法で作製した。 $\text{Cu-}1$ ,  $\text{Cu-}3$ ,  $\text{Cu-}5\text{at}\%\text{Zr}$  合金の SPS 材は、粗大なネットワーク状の Cu 相とモザイク状に分散した  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物との二相組織へと変化した。 $\text{Cu-}1$ ,  $\text{Cu-}3$ ,  $\text{Cu-}5\text{at}\%\text{Zr}$  合金の SPS 材から伸線加工して作製した線材の組織は、Cu 相中に  $\text{Cu}_5\text{Zr}$  化合物相が伸線方向に均一に分散していた。これら SPS 線材の導電率はおよび引張強度は、同組成の溶解鋳造法線材に比べ、前者は 28~60% 高く、後者は 40~56% 低くなった。

第5章では、亜共晶 Cu-Zr 合金の線材化と機械的・電氣的性質を調べた。亜共晶 Cu-Zr 合金の溶解鋳造材から伸線加工して作製した線材の強化機構は、ナノ繊維化した組織を持つ  $\alpha\text{-Cu}$  相と  $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相の複合則、変形双晶による強化、 $\text{Cu}_9\text{Zr}_2$  化合物相内の一部のナノアモルファス化、および  $\alpha\text{-Cu}$  相の加工硬化との相乗効果であることを示した。

第6章では、実用部品への応用について記した。本研究により開発した Cu-Zr 合金線材の高強度・高導電性によって、高周波コイルの巻き数向上や部品小型化による省エネルギー化を図れることを示した。高硬度・高導電性を持つ過共晶 Cu-Zr 合金 SPS 材は、抵抗溶接電極、軸受け、耐摩耗部品などへ実用化できる可能性を示した。

第7章では本論文を総括した。

本論文により、亜共晶 Cu-Zr 合金の微細組織と導電性および機械的強度の関係が明らかになった。本研究は高導電性・高強度 Cu 合金に関して新たな知見を与えており、学術的および実用的に多大な貢献をしている。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。